

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-058091

(43)Date of publication of application : 25.02.2000

(51)Int.Cl. H01M 8/04

H01M 8/06

H01M 8/24

(21)Application number : 11-145924

(71)Applicant : SULZER HEXIS AG

(22)Date of filing : 26.05.1999

(72)Inventor : SCHULER ALEXANDER DR

(30)Priority

Priority number : 98 98810740

Priority date : 31.07.1998

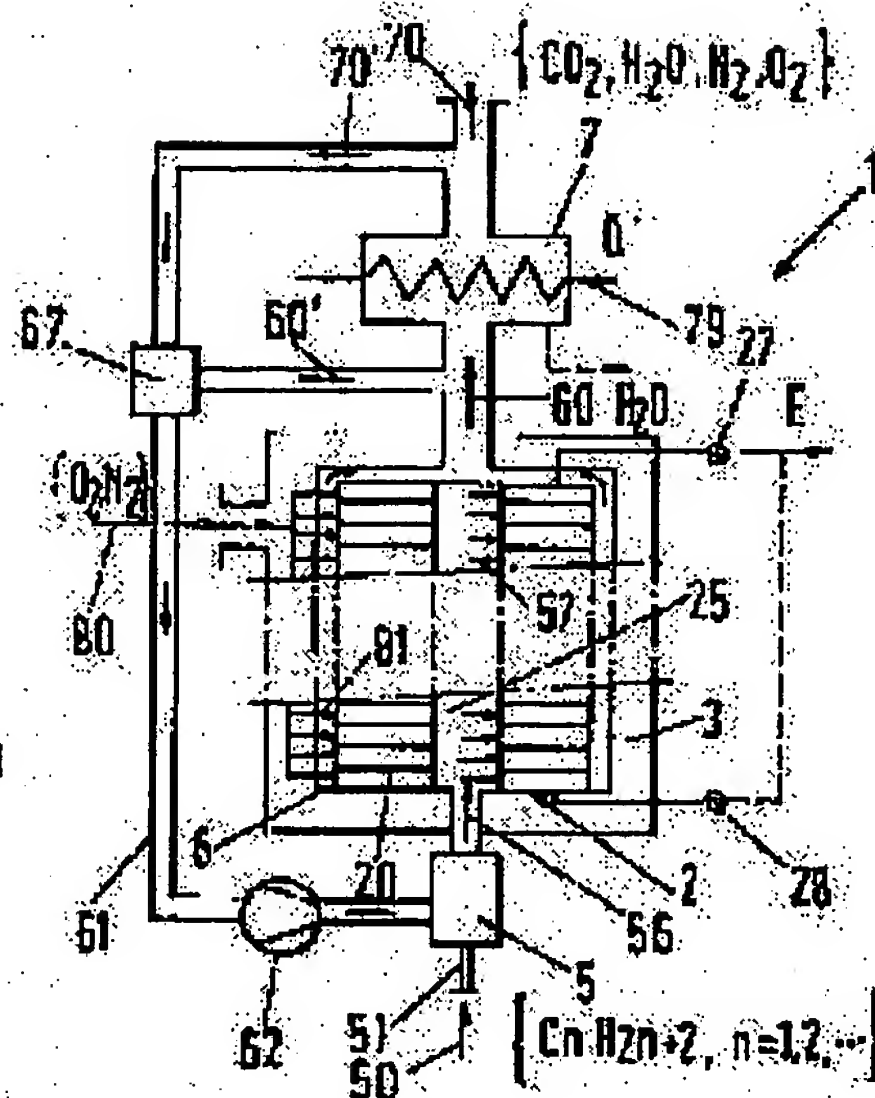
Priority country : EP

(54) PLANT HAVING HIGH-TEMPERATURE FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a plant having high-temperature fuel cells, capable of acquiring the amount of water necessary for a plant and supplying water for reforming so as to benefit all the processes.

SOLUTION: This plant 1 has high-temperature fuel cells 20 forming a planar and point-symmetrical stack 2. A supply point 5 is provided for gaseous fuel or liquid fuel 50. In a reformer connected to the supply point, at least part of the fuel is converted catalytically into carbon monoxide and hydrogen in the existence of water with process heat supplied. An after-burner chamber 6 is connected to the output side of the fuel cells 20. A return line 61 is disposed between the supply point and the chamber 6, and exhaust gases 60', 70' are returned to the supply point via the return line. When fuel is not gaseous, the supply point is constituted of a means, for example, an atomizer which is capable of supplying liquid fuel.



(51)Int.Cl.⁷

識別記号

F I

テーマコード(参考)

H 0 1 M 8/04

H 0 1 M 8/04

J

L

N

B

G

8/06

8/06

審査請求 未請求 請求項の数10 OL (全 6 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号

特願平11-145924

(22)出願日

平成11年5月26日(1999.5.26)

(31)優先権主張番号

9 8 8 1 0 7 4 0 - 5

(32)優先日

平成10年7月31日(1998.7.31)

(33)優先権主張国

ヨーロッパ特許庁 (E P)

(71)出願人 597087033

ズルツァー・ヘキス・アクチェンゲゼルシ
ャフト

Sulzer Hexis AG

スイス国 ツェーハー-8400 ヴィンター
トゥアー チュルヒヤーストラッセ 48

(72)発明者 アレキサンダ シューラー

スイス国 CH-8484 ヴァイスリンゲン
レンヴェク 33

(74)代理人 100068755

弁理士 恩田 博宣

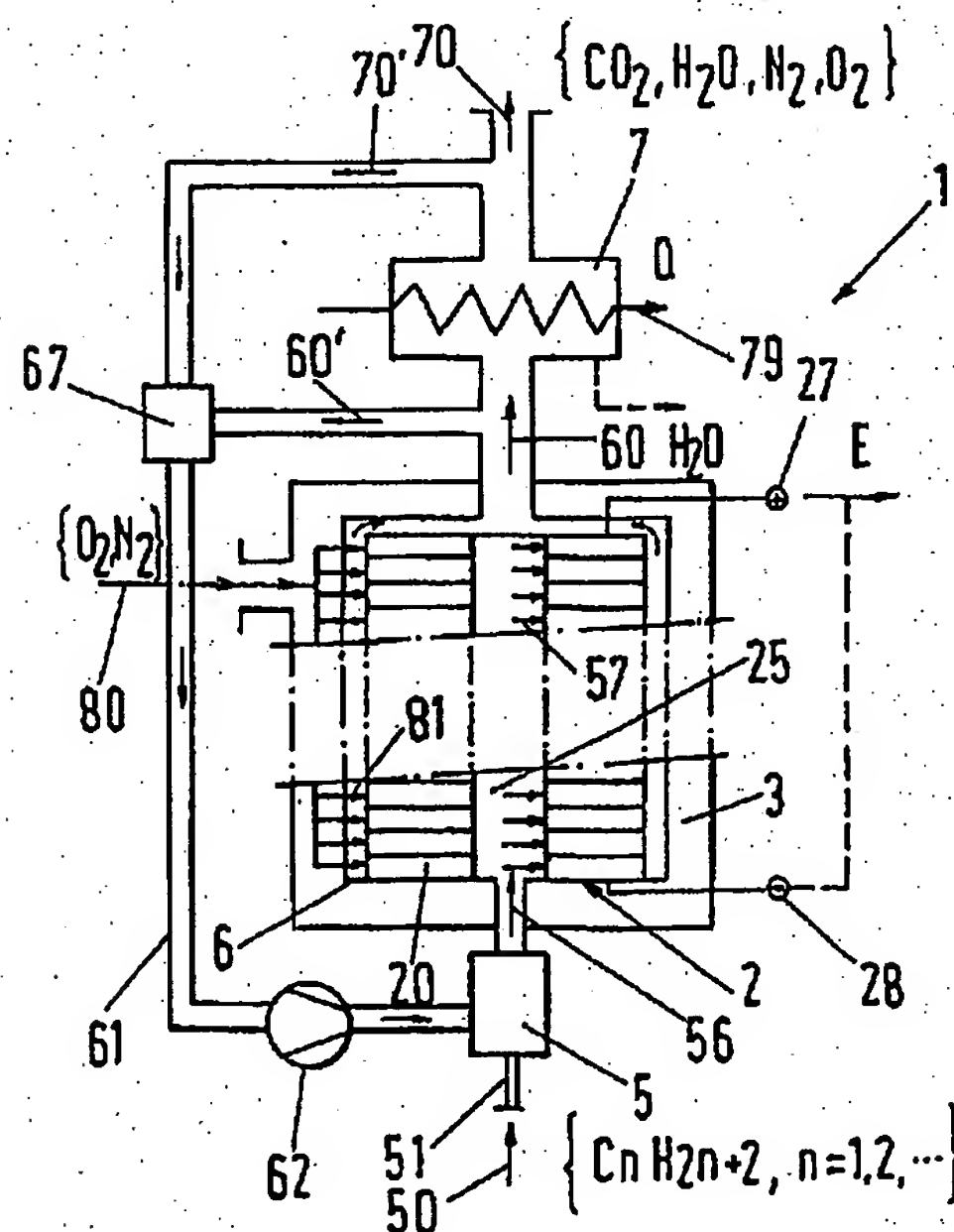
(54)【発明の名称】 高温燃料電池を有するプラント

(57)【要約】

【課題】 全プロセスに必要な水量を獲得し、全プロセスに利するように水を改質に供給できる高温燃料電池を有するプラントを提供する。

【解決手段】 プラント (1) は平面状で、かつ点対称なスタック (2) をなす高温燃料電池 (20) を有する。気体燃料 (50) 用または液体燃料 (50) 用の供給点 (5) が設けられている。供給点に続く改質器

(4) において、燃料は水の存在下及びプロセス熱が供給される状態で少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に触媒変換される。アフターバーナーチャンバー (6) は燃料電池 (20) の出力側に接続される。掃還ライン (61) は供給点とチャンバー (6) との間に配置され、この掃還ラインを経由して排気ガス (60', 70') が供給点に戻される。燃料が気体でない場合には、供給点は液体燃料で供給できる手段、例えば噴霧器から構成される。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 燃料の供給点(5)と、前記供給点

(5)に接続され、水の存在下及び熱が供給される状態において燃料が触媒変換されて少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に変換される改質器(4)と、燃料電池

(20)の出力側に接続されるアフターバーナーチャンバー(6)とから構成される高温燃料電池(20)を有するプラント(1)において、帰還ライン(61)が前記供給点(5)と前記アフターバーナーチャンバー

(6)との間に配置され、前記帰還ライン(61)を介して排気ガス(60', 70')が供給点(5)に戻され、燃料が気体でない場合には前記供給点(5)は液体燃料で供給できる手段、例えば噴霧器から成ることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント

(1)。

【請求項2】 請求項1において、熱交換器(7)がアフターバーナーチャンバー(6)に接続して配置され、前記熱交換器(7)においてアフターバーナーチャンバーから排気ガス(60)と共に移送された剰余熱(Q)が熱輸送手段(79)、特に水に転送され、排気ガス(60', 70')が通過する帰還ライン(61)の少なくとも一部が前記熱交換器(7)に接続されることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント

(1)。

【請求項3】 請求項2において、吸入手段(62)、例えば換気扇が、前記熱交換器(7)と燃料の供給点(5, 54)との間にある前記帰還ライン(61)に具備されていることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)。

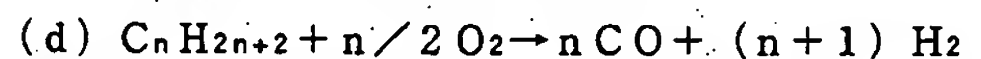
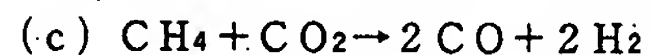
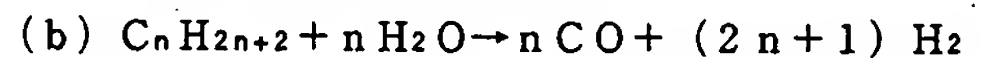
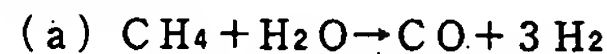
【請求項4】 請求項3において、混合部材(67)が前記熱交換器(7)と吸入手段(62)との間に接続して配置され、前記混合部材(67)により高温の排気ガス(60')が熱交換器(7)から出る排気ガス(70')に混合されることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)。

【請求項5】 請求項1乃至4のいずれか1項において、付加バーナーがアフターバーナーチャンバー(6)と熱交換器(7)との間に配置され、前記付加バーナーにおいてアフターバーナーチャンバー(6)の排気ガス(60)の少なくとも一部及び燃料による燃焼が行われることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)。

【請求項6】 請求項1乃至5のいずれか1項において、燃料電池(20)は中心に関して対称な形状のスタック(2)を形成し、前記スタック(2)において改質器(4, 54)で処理された燃料(57)がスタックの軸に沿って配置された中心キャビティ(25)を経由して供給され、前記改質器(4, 54)が前記中心キャビティ(25)に配置されることにより改質に必要なプロセス熱が燃料電池から改質器(4, 54)への放射によ

り転送されることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)。

【請求項7】 改質器(4, 54)に帰還され、水、二酸化炭素、酸素及び窒素を含む排気ガス(60', 70')は、例えば C_nH_{2n+2} (n:整数)のような炭化水素を含む燃料(50)との反応を行ない、流通プロセスの剰余熱の少なくとも一部が燃料電池(20)におけるプロセス熱として使用され、前記反応は以下のような吸熱反応(a)、(b)、(c)、及び部分酸化反応、即ち発熱反応(d)であることを特徴とする、流通ガス及び排気ガス(60)を分配すると共に剰余熱を生成するプロセスを行なうための請求項1乃至6のいずれか1項の高温燃料電池(20)を有するプラント(1)を運転する方法。



【請求項8】 請求項7において、排気ガス(60', 70')の最小量が改質プロセスに戻され、炭化水素の全部ではなく10%~90%程度のみが変換されることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント

(1)を運転する方法。

【請求項9】 請求項7または8において、周辺空気(80)が酸素を放出して熱を吸収する媒体として流通プロセスへ送風機(8)により供給され、供給される酸素の量は、このプロセスの化学量論的な必要量に関して過剰な酸素が最大で300%となるように設定され、帰還される排気ガス(60', 70')の一部が周辺空気(80)に混合されることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)を運転する方法。

【請求項10】 請求項7乃至9のいずれか1項において、さらに水が改質に使用され、前記水の量は選択される燃料(50)に適合していることを特徴とする高温燃料電池(20)を有するプラント(1)を運転する方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 この発明は、燃料の供給点と、前記供給点に接続され、水の存在下及び熱が供給される状態において燃料が触媒変換されて少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に変換される改質器と、燃料電池の出力側に接続されるアフターバーナーチャンバーとから構成される高温燃料電池を有するプラント、及びこのプラントを運転する方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 この種のプラントは、欧州特許出願公開EP-A-0780917号において公知であるような機器から構成される。この機器は燃料電池を有するセルブロックを具備し、燃料電池は断熱スリーブにより包囲

されている。アフターバーナーチャンバーはスリーブとセルブロックとの間に配置されている。燃料ガス（または未改質ガスともいわれる）を処理するための改質器は、スリーブの中に配置される。改質器は熱交換器に接続され、吸熱の改質プロセスに必要な熱は熱交換器により排気ガスから改質器へ供給される。

【0003】多くの場合に主としてメタンが含まれている燃料ガスの改質において、燃料は水の存在下及びプロセス熱が供給されるときに少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に触媒変換される。気体燃料の代わりに液体燃料が使用される場合は、別の問題が生じる可能性がある。即ち、液体燃料の場合は、適切な方法で改質器に供給しなければならない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、全プロセスに必要な水量を獲得し、全プロセスに利するように水を改質に供給できる高温燃料電池を有するプラントを提供することにある。

【0005】また、本発明の更なる目的は、前記プラントを運転する方法を提供することにある。

【0006】

【課題を解決するための手段】前記課題を達成するための本発明のプラントは、以下の構成である。即ち、燃料の供給点と、前記供給点に接続され、水の存在下及び熱が供給される状態において燃料が触媒変換されて少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に変換される改質器と、燃料電池の出力側に接続されるアフターバーナーチャンバーとから構成される高温燃料電池を有するプラントにおいて、帰還ラインが前記供給点と前記アフターバーナーチャンバーとの間に配置され、前記帰還ラインを介して排気ガスが供給点に戻され、燃料が気体でない場合には前記供給点は液体燃料で供給できる手段、例えば噴霧器から成る。

【0007】危険な燃料、特に液体燃料（炭化水素 C_nH_{2n+2} （ n は 6 以上の整数）を含む）の場合に生成される煤煙ができる限り防止される付加手段も具備することができる。また、本発明の目的は、アフターバーナーチャンバーから排出され、かなりの量が帰還される排気ガスによっても可能である。

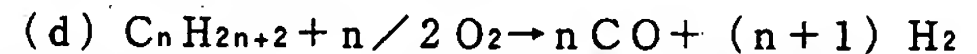
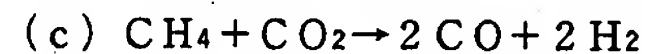
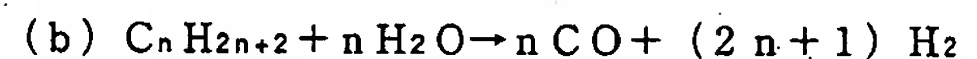
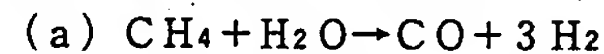
【0008】また、前記プラントにおいて、熱交換器がアフターバーナーチャンバーに接続して配置され、前記熱交換器においてアフターバーナーチャンバーから排気ガスと共に移送された剰余熱が熱輸送手段、特に水に転送され、排気ガスが通過する帰還ラインの少なくとも一部が前記熱交換器に接続される。

【0009】また、前記プラントにおいて、吸入手段、例えば換気扇が、前記熱交換器と燃料の供給点との間にある前記帰還ラインに具備されている。また、混合部材が前記熱交換器と吸入手段との間に接続して配置され、前記混合部材により高温の排気ガスが熱交換器から出る

排気ガスに混合される。

【0010】さらに、付加バーナーがアフターバーナーチャンバーと熱交換器との間に配置され、前記付加バーナーにおいてアフターバーナーチャンバーの排気ガスの少なくとも一部及び燃料による燃焼が行われる。

【0011】さらに、燃料電池は中心に関して対称な形状のスタックを形成し、前記スタックにおいて改質器で処理された燃料がスタックの軸に沿って配置された中心キャビティを経由して供給され、前記改質器が前記中心キャビティに配置されることにより改質に必要なプロセス熱が燃料電池から改質器への放射により転送される。また、前記本発明のプラントにおいて、流通ガス及び排気ガスを分配すると共に剰余熱を生成するプロセスを行なうための前記高温燃料電池を有するプラントを運転する方法は、改質器に帰還され、水、二酸化炭素、酸素及び窒素を含む排気ガスは、例えば C_nH_{2n+2} （ n ：整数）のような炭化水素を含む燃料との反応を行ない、流通プロセスの剰余熱の少なくとも一部が燃料電池におけるプロセス熱として使用され、前記反応は以下のような吸熱反応（a）、（b）、（c）、及び部分酸化反応、即ち発熱反応（d）である。



前記方法においては、排気ガスの最小量が改質プロセスに戻され、炭化水素の全部ではなく 10%～90%程度のみが変換される。

【0012】また、前記方法において、周辺空気が酸素を放出して熱を吸収する媒体として流通プロセスへ送風機により供給され、供給される酸素の量は、このプロセスの化学量論的な必要量に関して過剰な酸素が最大で 300% となるように設定され、送り戻される排気ガスの一部が周辺空気に混合される。

【0013】さらに、前記方法において、さらに水が改質に使用され、前記水の量は選択される燃料に適合している。本発明のプラントは、平面的なデザインで中心に関して対称な堆積状に配置された高温燃料電池を有する。供給点は気体燃料用または液体燃料用として具備される。供給点に続く改質器において、燃料は水の存在下及びプロセス熱が供給される状態で少なくとも一部が一酸化炭素及び水素に触媒変換される。アフターバーナーチャンバーは燃料電池の出力側に接続される。帰還ラインは供給点とアフターバーナーチャンバーとの間に配置され、この帰還ラインを経由して排気ガスが供給点に戻される。燃料が気体でない場合には、供給点は液体燃料で供給できる手段、例えば噴霧器から構成される。

【0014】酸素は送り戻される排気ガスと共に燃料に供給される。これにより改質器において部分酸化が生じ、部分酸化により炭化水素 C_nH_{2n+2} から一酸化炭素

及び水素が生成する。部分酸化による発熱が改質において吸収され、前記の吸収は平行して行われるが、このようにして発熱が利用される。部分酸化により煤煙生成が好適に抑制される。

【0015】炭化水素が一酸化炭素及び水素に改質されるときに、送り戻された排気ガスに付加的に含まれていた二酸化炭素も水素と同様に生成する。

【0016】

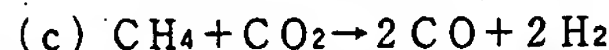
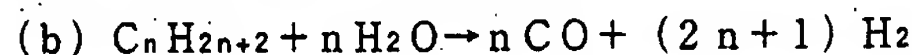
【発明の実施の形態】以下、本発明について、一実施例を図面に従って詳述する。図1に示すプラント1は以下の要素から構成される。平面状のリング形状の燃料電池20及び電気エネルギーEを放出する電極27、28を有するスタック2。周辺空気80、81が運転中に予熱され、スタック2に均一に分散されて供給される内部構造を備えたスリーブ3。スタック2とスリーブ3との間に配置され、熱交換器7（熱暖気Qが水循環による熱運搬手段79へ転移される）を経由して排気ガス60、70が送出されるアフターバーナーチャンバー6。高温の排気ガス60'が冷却された排気ガス70'と共に導入される混合部材67、排気ガス用帰還ライン61及び換気扇62。燃料50（供給ライン51）が帰還ライン61の送り戻された排気ガスと共に混合されるプラント部分5。混合物は前記供給点5に続く改質により処理され、処理済み燃料57は燃料電池20に供給され、燃料電池20よりガス58として流れる。

【0017】改質は吸熱プロセスである。改質器4（図2参照）は、スタック2の中心キャビティ（25）中にスタック軸に沿って配置され、燃料電池20により放出される放射熱が改質器4により吸収されるように形成されている。

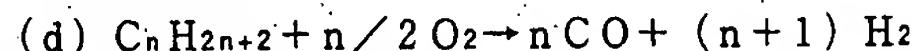
【0018】図2においてさらに詳細を示す。高温燃料電池20は電気化学的に活性なプレート21（2つの電極及びこれら電極間に配置される固体電解液）、及び隣接する燃料電池20のプレート21に電気的に伝導するように接続されるインターコネクタ22から成る。インターコネクタ22は、供給ライン81'を通じて供給される空気82を加熱するための熱交換器として形成される。加熱された空気83は迅速に、ガス58と平行に外部へと流れる。ガス58のうち燃料電池20において反応しなかった部分は、空気83と合流した後にアフターバーナーチャンバー6において燃焼される。リング間隙形状のアフターバーナーチャンバー6は、層36により内面側で封入されている空気透過性壁面31により包囲されている。空気80は第二リング間隙形状のスペース38を経由して壁面31上に分配され、壁面31上で加熱され、供給ライン81'を通過してインターコネクタ22に供給される。壁面31及び分配チャンバー38を包囲するスリーブは、真空中でリング間隙形状のチャンバー39により外部に対して閉鎖されている。

【0019】プラント1の運転中において、燃料電池2

0において生じるプロセスは流れを形成し、排気ガス及び剰余熱を生成する。改質器4に送り戻される排気ガス60'、70'は、水、二酸化炭素、酸素及び窒素を含む。例えば C_nH_{2n+2} （nは整数）のような炭化水素を含む燃料50の改質は、以下のような吸熱反応（a）、（b）、（c）から成る。



10 前記吸熱反応に平行して、部分酸化、即ち発熱反応（d）が始まる。



部分酸化において放熱された熱、及び燃料電池の流通プロセスエネルギーの剰余熱は、改質のプロセス熱を供給する。

20 【0020】好適にも排気ガス60'、70'の最小量のみが改質プロセスに戻される。燃料電池20のガス電極の材質が改質に適している場合には、炭化水素は完全に変換される必要はなく、10%~90%程度のみの部分的変換でよい。

【0021】図3は戻された排気ガス70'の一部が周辺空気80に混合されるプラント1を示す。送風機8により送入された周辺空気80は、流通プロセスにおいて酸素を放出して剰余熱を吸収する媒体として働く。送入された周辺空気80は過剰の酸素を生じる（このプロセスの化学量論的な必要量に比較して）。

30 【0022】ライン71及びバルブ72を通して混合された排気ガス70'と共に燃料電池20に流入する空気58中の酸素の割合は減少しているため、生成される排気ガス60に対して相応した酸素量の減少となる。送り戻される排気ガス70'と共に改質器に供給される酸素が少なくなり、部分酸化による処理量が減少するためにプラント1の効率が改善されるため、前記のことは有益である。第一実施例と同様に、高温の排気ガス60'は送り戻される排気ガス70'にも混合される（図3に図示されていない）。

40 【0023】熱交換器7は付加バーナー（図示せず）を具備することができる。この種の付加バーナーはアフターバーナーチャンバー6に続いて配置され、増大する必要熱量をカバーするために具備される。この付加バーナーにおいて、剰余燃料及び酸素を含む排気ガス60によりさらに燃焼が行われる。このようにさらに燃焼を行なうために、排気ガス60の一部のみを使用することも可能である。

【0024】図4は、ポンプ52により液体燃料50を供給するための供給点5を示す。この燃料50はノズル装置54において噴霧され、戻される排気ガス70'（または70'及び60'）と混合される。生成される

50 混合物、即ちエアゾール飛沫56'はスタック2の中心キャビティ25に配置される改質器4に送入される（図

1及び図2参照)。管状の改質器4において、エアゾール飛沫56'は触媒を運搬するガス透過性構造40により処理される(改質及び/または部分酸化)。このガス透過性構造40は図5にその断面図を示すが、内部ゾーン40a及び外部ゾーン40bが同心状に配置された構成である。外部ゾーン40bは均一に形成され、内部ゾーン40aよりも実質的に大きい半径方向の流量抵抗を生じる。内部ゾーン40aは飛沫沈殿剤として形成される。この液体相の燃料50は蒸発または化学反応の結果として気体形態に変化する。外部ゾーン40bにおいて処理がさらに進行し、同時に処理されたガス57'はより密な外部ゾーン40bを通過して各々の燃料電池20上に均一に分布される。

【0025】改質及び/または部分酸化用の触媒としては、例えば以下のような物質が考慮される。即ち、白金、パラジウム、ルテニウム、ロジウム、及びニッケル、またはこれらのうち2種以上の混合物が触媒として使用できる。しかしながらニッケルは煤煙が形成されるため、部分酸化には不適當である。

【0026】扱いにくい炭化水素(ガソリン、発火油、なたね油)の場合は、炭素沈積、即ち煤煙形成の危険を除去できるようにするために、さらに水吸入口が必要である。この水吸入口により、改質と部分酸化との割合が所望した通りに設定できる。前記の割合は燃料の種類により相違するため、この方法は各々の燃料に応じて理想的に適合できる。僅かに煤煙が形成される燃料(ナチュラルガス、バイオガス、メタノール)では、水の供給は不要である。

【0027】

【表1】

n =	H ₂ O	CO ₂	O ₂
1	206	246	-36
4	650	810	-318
16	2469	3109	-515
20	3076	3876	-654

表1において、各々の炭化水素C_nH_{2n+2}(nは1, 4, 16, 20)について、改質プロセスでは水及び二

酸化炭素(正エンタルピー値)において吸熱されるエンタルピー値(単位: kJ/mol)が、及び部分酸化(負エンタルピー値)において放熱されるエンタルピー値が表中から選ばれる。

【0028】送り戻される排気ガス中の窒素は結果として燃料ガスの希釈になる。このことは、プラントの電気化学的性能に対して重大な悪影響はない。窒素は煤煙生成を減少させるため、好適な効果をもたらす。

【0029】気体燃料に十分な圧力がある場合には、排気ガスの帰還用に具備される換気扇62(図3)は、噴射器により置き換えることができる。前記したような燃料と共に、排気ガスを吸入できる噴射器内において駆動流が発生し、燃料と混合される改質器中に供給される。

【0030】本発明の実施例は、セルブロックの内側に改質器が配置されたプラントに関して説明している。しかしながら本発明のプラントは、改質器がセルブロックの外側でスリーブ内に配置されたプラント(従来技術に記載した欧州特許出願公開EP-A-0780917号のように)、または改質器が完全にスリーブの外側、例えば図1のプラント部分5のようなプラントにも言及している。

【0031】

【発明の効果】以上詳述したように、本発明の高温燃料電池を有するプラントは、全プロセスに必要な水が容易に得られ、改質が効率的に行われるという優れた効果を発揮する。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の高温燃料電池IIを有するプラントの回路図。

【図2】燃料電池の断面図を含むプラントの一部断面図。

【図3】排気ガスが帰還される本発明のプラントの第二実施例の概略図。

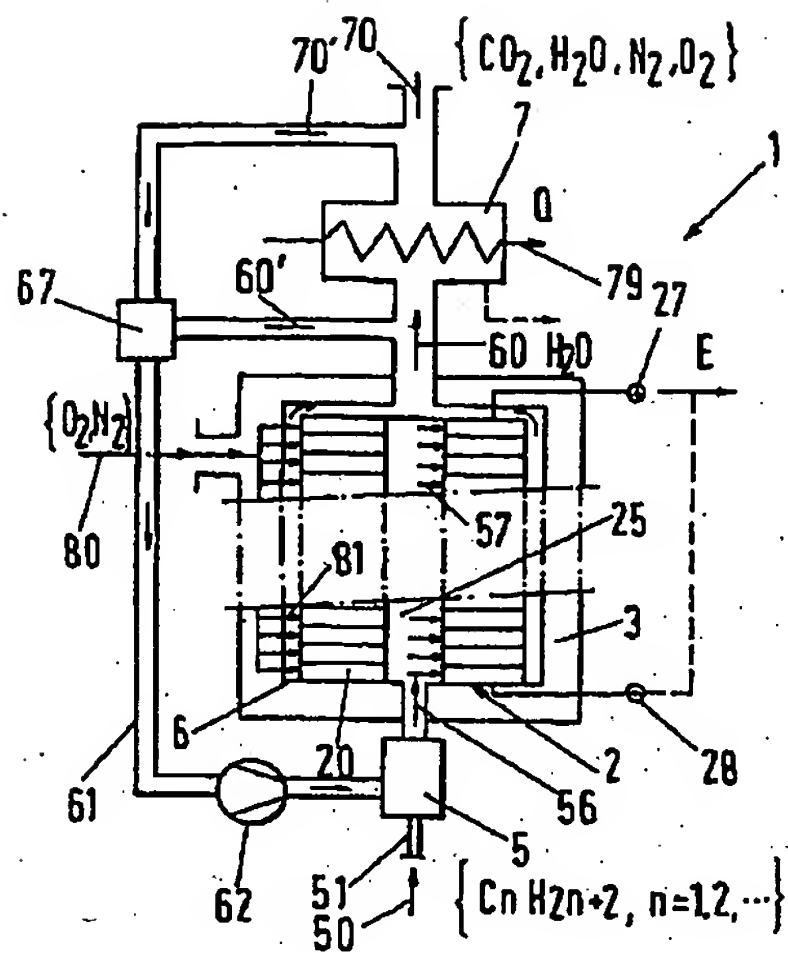
【図4】液体燃料の供給点の断面図。

【図5】燃料電池用改質器の触媒キャリアとして使用されるガス透過性構造の断面図。

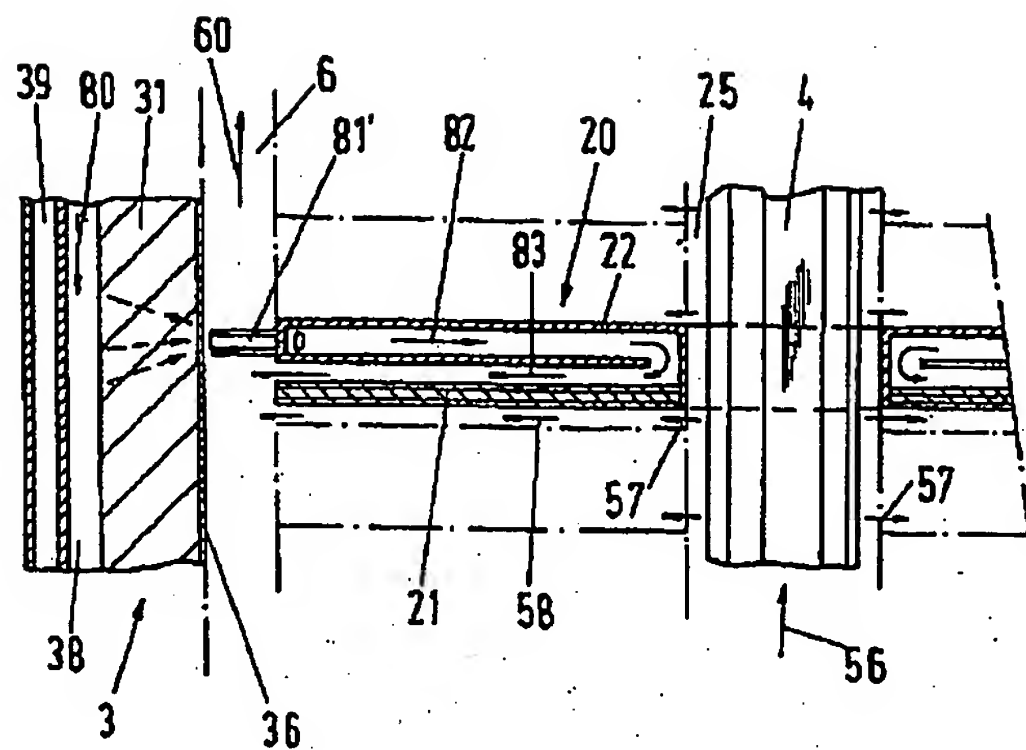
【符号の説明】

1…プラント、4, 54…改質器、5…供給点、6…アフターバーナーチャンバー、20…燃料電池、50…燃料、61…帰還ライン、60, 60', 70'…排気ガス。

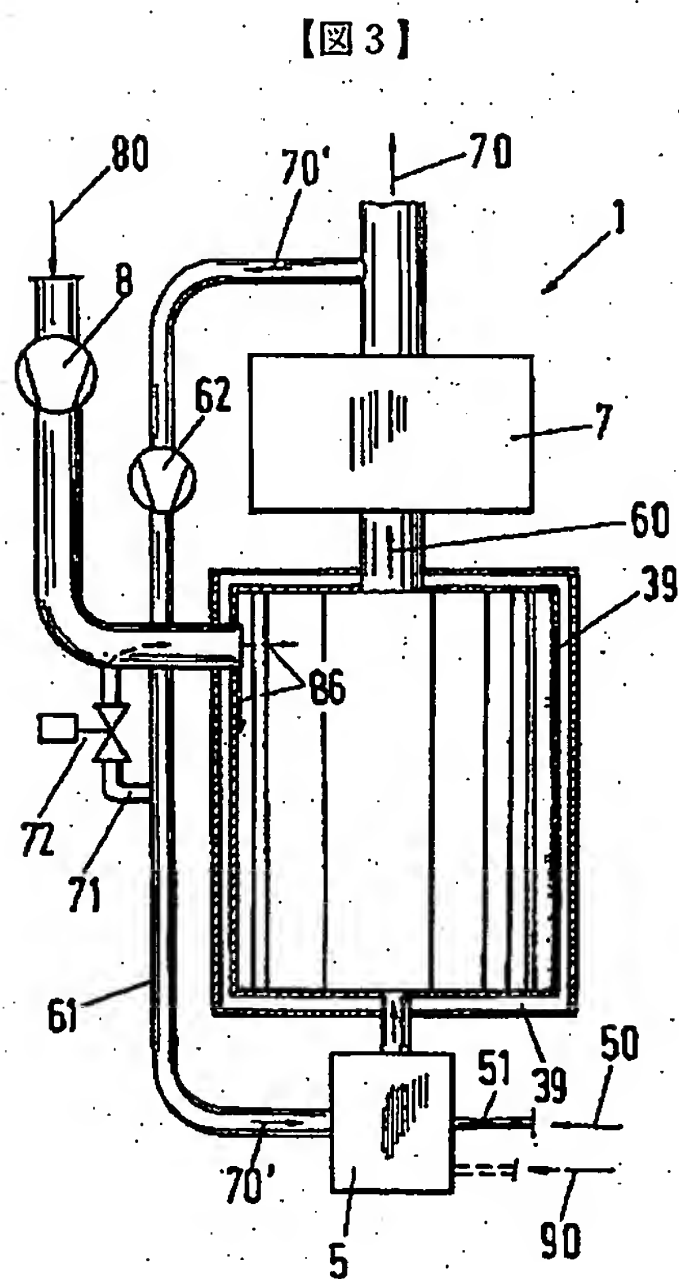
【図1】



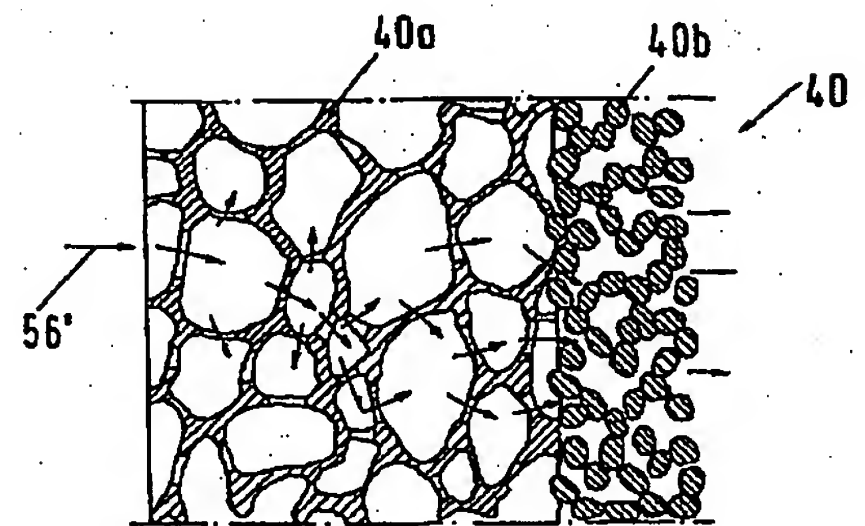
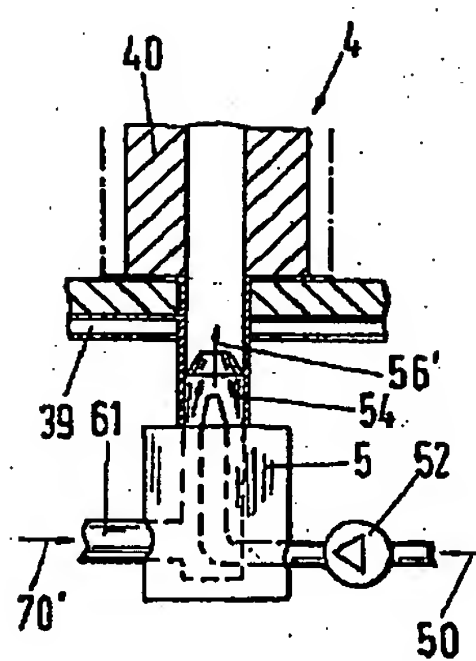
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

H01M 8/24

識別記号

FI

H01M 8/24

テラコト(参考)

E